

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-025586
 (43)Date of publication of application : 25.01.2002

(51)Int.CI. H01M 8/02
 H01M 8/10

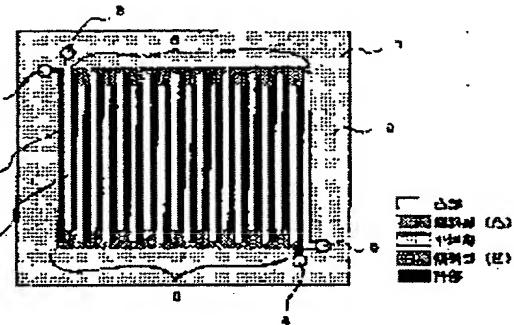
(21)Application number : 2000-206602 (71)Applicant : NIPPON STEEL CORP
 (22)Date of filing : 07.07.2000 (72)Inventor : SUZUKI NORIYUKI
 YOSHIDA YUICHI
 NAMIE NO TSUTOMU
 KIHIRA HIROSHI

(54) SEPARATOR FOR SOLID HIGH POLYMER MOLECULE FUEL CELL AND FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a separator which enable stamped out and is applicable to a low cost and highly durable solid high polymer molecule fuel cell which can be put under press processing, and a fuel cell.

SOLUTION: The separator is characterized in having two or more continuous slots composed of an even peripheral part and an uneven section used as gas paths having different surfaces in their front and back in the center section. And, the separator is also characterized in having a slanted shape at an end part of the slot and having a sealing component sealing both sides of the surrounding flat sections. Further, the separator is made of stainless steel, or titanium.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 18.03.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3400976

[Date of registration] 21.02.2003

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-25586

(P2002-25586A)

(43)公開日 平成14年1月25日 (2002.1.25)

(51)Int.Cl.⁷

H 0 1 M 8/02

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02

マーク一 (参考)

R 5 H 0 2 6

B

S

8/10

8/10

審査請求 未請求 請求項の数 8 O.L. (全 8 頁)

(21)出願番号

特願2000-206602(P2000-206602)

(22)出願日

平成12年7月7日 (2000.7.7)

(71)出願人 000006655

新日本製鐵株式会社

東京都千代田区大手町2丁目6番3号

(72)発明者 鈴木 規之

富津市新富20-1 新日本製鐵株式会社技術開発本部内

(72)発明者 吉田 裕一

富津市新富20-1 新日本製鐵株式会社技術開発本部内

(74)代理人 100062421

弁理士 田村 弘明 (外1名)

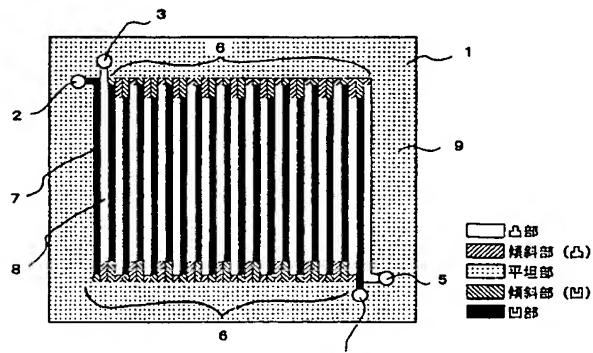
最終頁に統く

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池用セパレータ及び燃料電池

(57)【要約】

【課題】 低コスト・高耐久型の固体高分子型燃料電池に適用できる、プレス加工が可能なセパレータ及び燃料電池を提供する。

【解決手段】 周辺部が平坦で、中央部に表裏面が異なるガスの流路となる凸部と凹部からなる複数の連続的な溝を有し、かつ溝端部の形状が傾斜していることを特徴とし、また周辺の平坦部の両面をシールするシール部材を有することを特徴とし、更にセパレータがステンレス鋼製もしくはチタン製であることを特徴とする固体高分子型燃料電池用セパレータ。



【特許請求の範囲】

【請求項1】周辺部が平坦で、中央部に表裏面が異なるガスの流路となる凸部と凹部からなる複数の連続的な溝を有し、かつ溝端部の形状が傾斜していることを特徴とする固体高分子型燃料電池用セパレータ。

【請求項2】周辺の平坦部の両面をシールするシール部材を有することを特徴とする請求項1記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

【請求項3】セパレータがステンレス鋼製もしくはチタン製であることを特徴とする請求項1又は2記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

【請求項4】溝端部の傾斜角を、溝ごとに変化させることを特徴とする請求項1～3の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

【請求項5】溝ピッチP (mm)、肩部半径R (mm)、平行部長さW (mm)、板厚t (mm)、材料の伸びEL (%)、降伏応力YS (kgf/mm²)として、溝深さH (mm)を次式で計算される値以下とすることを特徴とする請求項1～4の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

$$H = 2 \times W \times (E L / Y S)^{1.01} \times (R / t)^{0.318} \times (1 - W / P)^{2.66}$$

【請求項6】肩部半径R (mm)、平行部長さW (mm)、板厚t (mm)、材料の伸びEL (%)、降伏応力YS (kgf/mm²)として、溝端部の傾斜角θ (度)を次式で計算される値以下とすることを特徴とする請求項1～4の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

$$\theta = 9.0 \times (E L / Y S)^{0.372} \times (R / t)^{0.270} \times (W / t)^{-0.265}$$

【請求項7】溝の断面積を、流路の下流に行くに従い、次第に広くすることを特徴とする請求項1～4の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

【請求項8】請求項1～7の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータを用いることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電力を直接的駆動源とする自動車、小規模の発電システムなどに用いられる固体高分子型燃料電池に関わる。

【0002】

【従来の技術】環境保全に対する意識の高まりから、化石燃料を利用した現行の内燃機関から水素を利用した固体高分子型燃料電池による電気駆動型の自動車や、分散型コジェネシステムへの移行が世界的に検討されている。これらの新技術が広く一般に利用できるようにするために、低コスト化と高信頼化に関わる技術開発を燃料供給システムも含めて推進する必要がある。

【0003】近年、電気自動車用燃料電池の開発が固体

高分子材料の開発成功を契機に急速に進展し始めている。固体高分子型燃料電池とは、従来のアルカリ型燃料電池、磷酸型燃料電池、溶融炭酸塩型燃料電池、固体电解質型燃料電池などと異なり、水素イオン選択透過型の有機物膜を电解質として用いることを特徴とする燃料電池であり、燃料には純水素のほか、アルコール類の改質によって得た水素ガスなどを用い、空気中の酸素との反応を電気化学的に制御することによって電力を取り出すシステムである。

【0004】固体高分子膜は薄くても十分に機能し、电解質が膜中に固定されていることから、電池内の露点を制御してやれば电解質として機能するため、水溶液系电解質や溶融塩系电解質など流動性のある媒体を使う必要がなく、電池自体をコンパクトに単純化して設計できることも特徴である。

【0005】固体高分子型燃料電池は、水素の流路を持つセパレータ、燃料極、固体高分子膜、空気（酸素）極、空気（酸素）の流路を持つセパレータよりなるサンドイッチ構造を単セルとして、実際にはこの単セルを積層したスタックが用いられる。したがって、セパレータの両面は独立した流路を持ち、片面が水素、もう一方の片面が空気および生成した水の流路となる。

【0006】冷却用水溶液の沸点以下の領域で稼働する固体高分子型燃料電池の構成材料としては、温度がさほど高くないこと、その環境下で耐食性・耐久性を十分に発揮させることができること、さらに、任意の流路形状を形成するため炭素系の材料を切削加工などにより加工して使用されていているが、より低コスト化や小型化、すなわちセパレータの薄肉化を目指してステンレス鋼やチタンの適用に関する技術開発が進んでいる。

【0007】従来、燃料電池用ステンレス鋼としては、特開平4-247852号、同4-358044号、同7-188870号、同8-165546号、同8-225892号、同8-311620号などの公報に開示されているように、高い耐食性が要求される溶融炭酸塩環境で稼働する燃料電池用ステンレス鋼がある。また特開平6-264193号、同6-293941号、同9-67672号などの公報に開示されているように、数百度の高温で稼働する固体电解質型燃料電池材料の発明がなされてきた。

【0008】また特開平10-228914号公報には、単位電池の電極との接触抵抗の小さい燃料電池用セパレータを得ることを目的に、ステンレス鋼（SUS304）をプレス成形することにより内周部に多数個の凹凸からなる膨出成形部を形成し、膨出成形部の膨出先端側端面に0.01～0.02μmの厚さの金メッキ層を形成したことを特徴とする燃料電池用セパレータを提案し、その使用法として燃料電池を形成する際に燃料電池用セパレータを積層された単位電池の間に介在させ、単位電池の電極と膨出成形部の膨出先端側端面に形成され

た金メッキ層とが当接するように配設し、燃料電池用セパレータと電極との間に反応ガス通路を画成する技術が開示されている。

【0009】しかし、この技術をもとに実際に固体高分子型燃料電池を試作すると、以下4点の技術的問題があることがわかった。

a) 長期耐久性が求められる固体高分子型燃料電池の環境において、ステンレス製セパレータの合金成分としては一般汎用鋼種であるSUS304では不十分となる場合があり、その対策としてCr, Ni, Moなどの含有量を上げる必要がある。

b) Cr, Ni, Moなどの合金組成を上げたステンレス鋼の場合、湿式の金メッキ法だけでは金メッキ層とステンレス鋼基板の間に、ステンレス鋼の不働態酸化皮膜がメッキ処理中に完全に還元されずに残留し、ステンレス鋼と金メッキ層の間の層間抵抗が生じ、電力ロスの原因となることがある。その対策として、皮膜を除去しながら貴金属を付着させる必要がある。

【0010】c) セパレータは、プレス成形により内周部に多数個の凹凸からなる膨出成形部を形成した形を想定しているが、実際に四周に平坦部をもつ当該部材の加工を試みると、凹凸からなる膨出成形部において延性割れを生じ、さらに、長期信頼性向上のために合金組成を上げたステンレス鋼は、SUS304に比べ加工性が低下することから、この形状にプレス成形することが困難である。

d) セパレータは内周部に多数個の凹凸からなる膨出成形部を形成した形を想定しており、セパレータと電極との間を反応ガスが自由に流れる構造となっているが、この場合、ガスの流入口から流出口まで均一にガスを流すことが困難であり、反応効率が低下すること、またガスの流速が低く、酸素側で生成した水を排出することが困難になる、という問題がある。

発明者らは既に、前記a) やb) の問題点に対しては、その解決手段を特願平11-62813号、同11-170142号などで提案している。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記c) およびd) の問題に鑑み、低コスト・高耐久型の固体高分子型燃料電池に適用できる、プレス加工が可能なセパレータ及び燃料電池を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】上述の課題を解決するため、固体高分子型燃料電池の作用原理に基づき、プレス成型時の材料挙動を詳細に検討した結果、本発明を完成させたもので、その要旨とするところは以下の通りである。

(1) 周辺部が平坦で、中央部に表裏面が異なるガスの流路となる凸部と凹部からなる複数の連続的な溝を有し、かつ溝端部の形状が傾斜していることを特徴とする

固体高分子型燃料電池用セパレータ。

(2) 周辺の平坦部の両面をシールするシール部材を有することを特徴とする前記(1)記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

(3) セパレータがステンレス鋼製もしくはチタン製であることを特徴とする前記(1)又は(2)記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

(4) 溝端部の傾斜角を、溝ごとに変化させることを特徴とする前記(1)～(3)の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

(5) 溝ピッチP (mm)、肩部半径R (mm)、平行部長さW (mm)、板厚t (mm)、材料の伸びEL (%)、降伏応力YS (kgf/mm²)として、溝深さH (mm)を次式で計算される値以下とすることを特徴とする前記

(1)～(4)の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

$$H = 2 \times W \times (E L / Y S)^{1.01} \times (R / t)^{0.318} \times (1 - W / P)^{2.66}$$

(6) 肩部半径R (mm)、平行部長さW (mm)、板厚t (mm)、材料の伸びEL (%)、降伏応力YS (kgf/mm²)として、溝端部の傾斜角θ (度)を次式で計算される値以下とすることを特徴とする前記(1)～(4)の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

$$\theta = 90 \times (E L / Y S)^{0.372} \times (R / t)^{0.270} \times (W / t)^{-0.265}$$

(7) 溝の断面積を、流路の下流に行くに従い、次第に広くすることを特徴とする前記(1)～(4)の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータ。

(8) 前記(1)～(7)の何れか1項に記載の固体高分子型燃料電池用セパレータを用いることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【0013】

【発明の実施の形態】以下に図面を用いて詳細を説明する。前記(1)～(4)記載のセパレータ1の平面図の例を図1に、また溝端部6におけるセパレータ1、シール板10、および電極である炭素繊維集電体11の具体的積層構造の一例を図2および図3に示す。ここで、ガスの流入孔2, 3から供給された水素を含む燃料ガス又は酸素(空気)が、それぞれセパレータの凹部表面側7のみ又は凸部裏面側8のみを流れ、流出孔4又は5から排出される。溝端部における表面側のガスの流れを図2中に矢印で示す。

【0014】溝端部において、凸部および凹部の傾斜角を、1本おきに緩急差をつけることにより、ガスが下流側へ短絡することを抑制し、溝端部で折り返し、セパレータのガス流路全面にわたり、ほぼ一筆書きの形状で均一にガスを流すことが可能である。またガスの流速を上げられることから、酸素側で生成された水の排出も容易となる。シール板10は、セパレータ1の溝高さより僅

かに厚く、シール板の中央部くり抜き部の端面の角度を、前述した溝端部の最大傾斜角より僅かに大きくなることにより、ガスの下流側への短絡はさらに抑制される。

【0015】図4および図5には、溝端部において、凸部および凹部の傾斜角を4本おきに緩急差をつける溝配列の例を示す。溝端部における表面側のガスの流れを図5中に矢印で示す。この例では、2本の溝を並列にガスが流れ、端部の折り返し部では、ガスが混合され、再び2本に分岐して流れる流路構造を形成する。前述した図1の配列に比較して、溝の平行部における流速は若干低下するが、圧損が少なくなるという効果が得られる。いまでもなく、緩急差をつける溝配列は、ここで示された2例に限定されるものではなく、ガスの供給装置の能力、発電効率等から任意に選択されるべきものである。このように溝端部に緩急差をつけることにより、多様な流路パターンを形成できる。

【0016】セパレータの材質は、電子伝導性、耐食性、気密性の観点から、グラファイト板、金属板等を使用できるが、薄くできてプレス加工が可能なステンレス鋼製又はチタン製であることが好ましい。

【0017】図6には、前記(1)～(4)記載のセパレータおよびシール板を用いた、前記(6)記載の燃料電池スタックの構造を示す。セパレータ1、シール板10、電極である炭素繊維集電体11の積層構造で、両面に電極触媒が塗布された固体高分子膜12をサンドイッチすることで、単セルが形成される。図中のAサイクルを繰り返し積層することで燃料電池スタックが構成される。また、固体高分子型燃料電池においては反応に伴う発熱があり、固体高分子膜を適切な温度に保つためにスタックを冷却する必要があるが、このセパレータの溝は冷却水の流路とすることも可能であり、スタックサイクルの適当な間隔で、冷却水流路を含むBサイクルを挿入することで、スタックの冷却が可能となる。

【0018】シール板の材質は、適度な弾性を有し、冷却水の沸点以下で分解・塑性変形が起きない材料であればよく、シリコン樹脂、ブタジエンゴム系樹脂、フッ素系樹脂などが適用可能で、溝高さより僅かに厚いシール板を縫め付けることによりガスがシールされ、また適度な弾性を有することで、セパレータ等の微小な変形にも追従することが可能となる。図中、固体高分子膜を挟んで、水素側および酸素側の流路が対向する形式としているが、これに限定されることなく、両者が交差する形式でもかまわない。

【0019】図7には、前記(5)記載の溝の断面形状を示す。セパレータの溝周期は、ガス供給の均一性と集電効率の観点からより小さいことが望ましく、また接触抵抗低減の観点から、電極との接触面積が大きいことが望ましいが、板厚に比較して溝周期が小さくなると、曲げ歪みが増加し、また、接触面積を増やすために角の曲

率半径を小さくしたり、平行部の長さを大きくすることによっても歪みが増加し、加工中に破断して成形が困難となる。一般には、溝周期は2～3mmで、溝深さは最大1mm程度のものが燃料電池用セパレータの流路として使われるが、板厚0.1～0.3mm程度の金属板を成形すると、板厚に比較して溝形状が微細で、角部の曲げ歪みが大きくなり、成形中に角部で破断することが多かつた。

【0020】そこで、種々の形状について金型を試作し、種々の材料を用いてプレスを行った結果、材料の板厚、伸び、降伏応力に対して、溝周期、溝深さ、肩部曲率半径、平行部長さを、適切な関係を保つように金型を設計すれば、成形可能であることを見いだした。具体的には、溝ピッチP(mm)、肩部半径R(mm)、平行部長さW(mm)、板厚t(mm)、材料の伸びEL(%)、降伏応力YS(kgf/mm²)として、溝深さH(mm)が次式で計算される値以下であれば破断することなく、また次式で計算される値程度にすることで、流路の断面積も確保できることを見いだした。

$$H = 2 \times W \times (E L / Y S)^{1.01} \times (R / t)^{0.318} \times (1 - W / P)^{2.66}$$

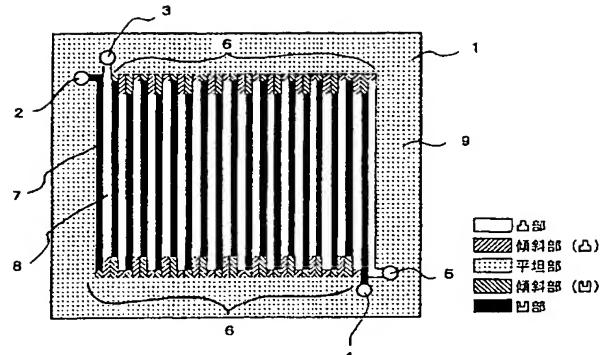
【0021】図8には、前記(6)記載の溝端部の形状を示す。溝端部の形状すなわち傾斜角度は、ガスが下流側へ短絡することを抑制する観点からは直角であることが望ましいが、上述したように、傾斜角度を大きくすると角部での曲げ歪みが大きくなり、成形中に角部で破断することが多かつた。そこで、種々の形状について金型を試作し、種々の材料を用いてプレスを行った結果、材料の板厚、伸び、降伏応力に対して、肩部曲率半径、平行部長さを、適切な関係を保つように金型を設計すれば、成形可能であることを見いだした。具体的には、肩部半径R(mm)、平行部長さW(mm)、板厚t(mm)、材料の伸びEL(%)、降伏応力YS(kgf/mm²)として、溝端部の傾斜角θ(度)が次式で計算される値以下であれば、破断することなく、また次式で計算される値程度にすることで、ガスの下流側への短絡も低く抑えられることを見いだした。

$$\theta = 90 \times (E L / Y S)^{0.372} \times (R / t)^{0.270} \times (W / t)^{-0.265}$$

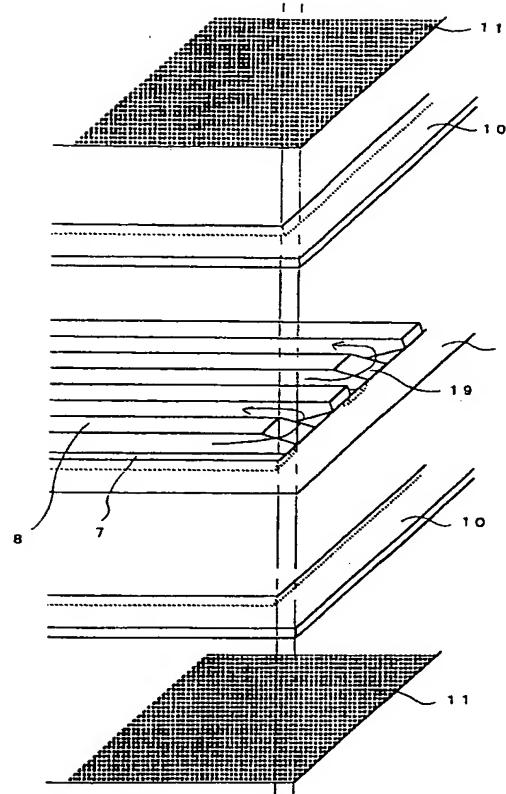
【0022】図9には、前記(7)記載の溝の断面積を、流路の下流に行くに従い次第に大きくする溝配列の例を示す。一般にガスの圧力は、流路に沿って下流に行くに従って圧力損失により低下する。一方、触媒反応効率の観点からは圧力が高い方が望ましく、また固体高分子膜の強度の観点からは、水素側と酸素側の圧力差は小さいことが望ましい。そこで、流路の断面積を流路の下流に行くに従って次第に大きくすることにより、圧力低下を低減することが可能となり、ガス供給のためのポンプの能力を上げることなく、また固体高分子膜両面の圧力差を低減することが可能となる。図では流路の幅を次

【图0028】本装配图效果。1. 将孔φ9.0 C 加强筋 C 厚度为3.2 mm 加强筋至零件A上。2. 加工孔φ9.0 A，强度要求为水槽孔尺寸，且孔壁厚度为1.2 mm。3. 加工孔φ9.0 A，孔壁厚度为1.2 mm。4. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。5. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。6. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。7. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。8. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。9. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。10. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。11. 将孔φ9.0 C 加强筋至零件A上。12. 固体高分子膜。13. 橡胶（聚氯乙烯）。14. 融聚（聚氯乙烯）。15. 橡胶力支撑出口。16. 融聚（聚氯乙烯）。17. 水槽入孔。18. 水槽出口。

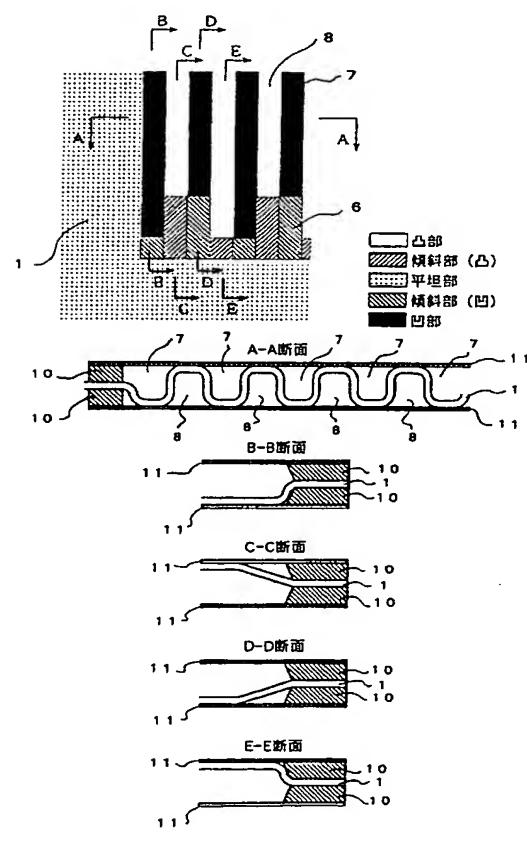
【図1】



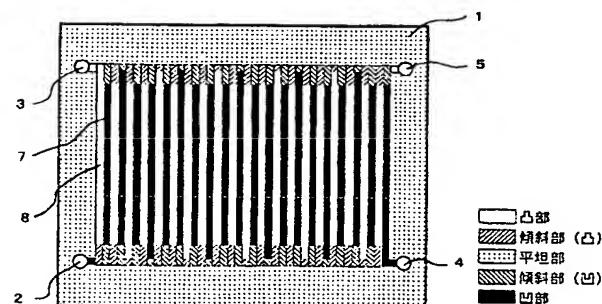
【図2】



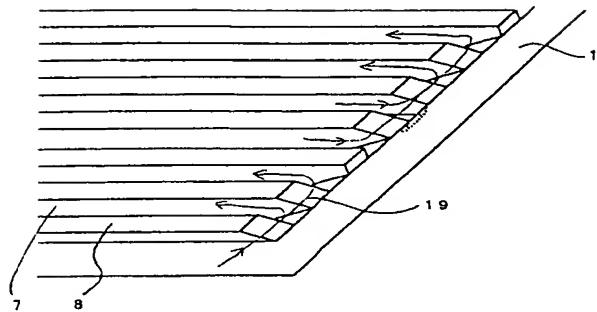
【図3】



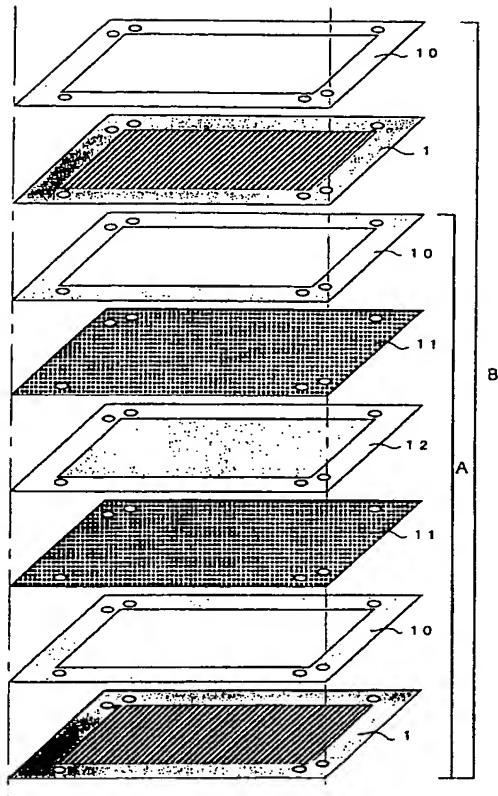
【図4】



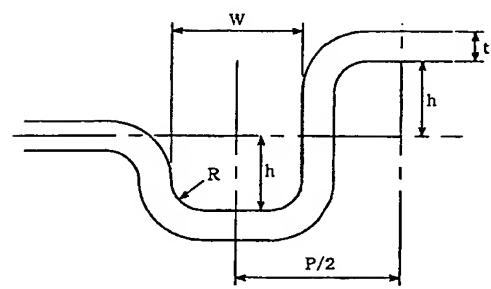
【図5】



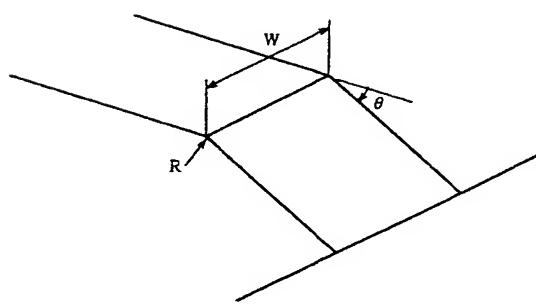
【図6】



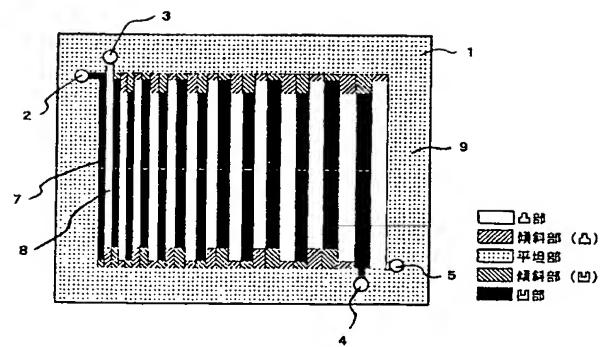
【図7】



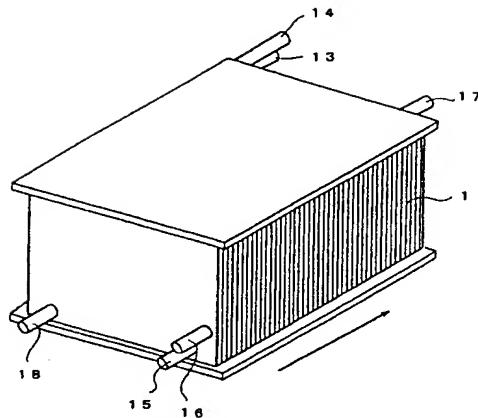
【図8】



【図9】



【図10】



フロントページの続き

(72)発明者 波江野 勉

富津市新富20-1 新日本製鐵株式会社
技術開発本部内

(72)発明者 紀平 寛

富津市新富20-1 新日本製鐵株式会社
技術開発本部内

F ターム(参考) 5H026 AA06 CC03 EE02 EE08 HH02
HH03